

**This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

**Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.**

**Defects in the images may include (but are not limited to):**

- **BLACK BORDERS**
- **TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- **FADED TEXT**
- **ILLEGIBLE TEXT**
- **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- **COLORED PHOTOS**
- **BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS**
- **GRAY SCALE DOCUMENTS**

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**PCT**WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internati nale Patentklassifikation 6 :

H01M 8/24, 8/10, 8/02, 6/42, 6/46

A1

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 96/23323

(43) Internati nales  
Veröffentlichungsdatum:

1. August 1996 (01.08.96)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE96/00111

(22) Internationales Anmeldedatum: 23. Januar 1996 (23.01.96)

(30) Pri ritätsdaten:  
195 02 391.9 26. Januar 1995 (26.01.95) DE(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):  
FRAUNHOFER-GESELLSCHAFT ZUR FÖRDERUNG  
DER ANGEWANDTEN FORSCHUNG E.V. [DE/DE];  
Leonrodstrasse 54, D-80636 München (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): LEDJEFF, Konstantin  
[DE/DE]; Kleinbühlweg 6, D-79189 Bad Krozingen (DE).  
NOLTE, Roland [DE/DE]; Schwabenstrasse 28, D-79211  
Denzlingen (DE).(74) Anwalt: BUTENSCHÖN, BERGMANN, NÖTH, REIT-  
ZLE, GRAMBOW, KRAUS; Mozartstrasse 17, D-80336  
München (DE).(81) Bestimmungsstaaten: JP, US, europäisches Patent (AT, BE,  
CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT,  
SE).Veröffentlicht  
Mit internationalem Recherchenbericht.

(54) Title: ASSEMBLY OF SINGLE CELLS TO FORM A DIAPHRAGM ELECTRODE UNIT

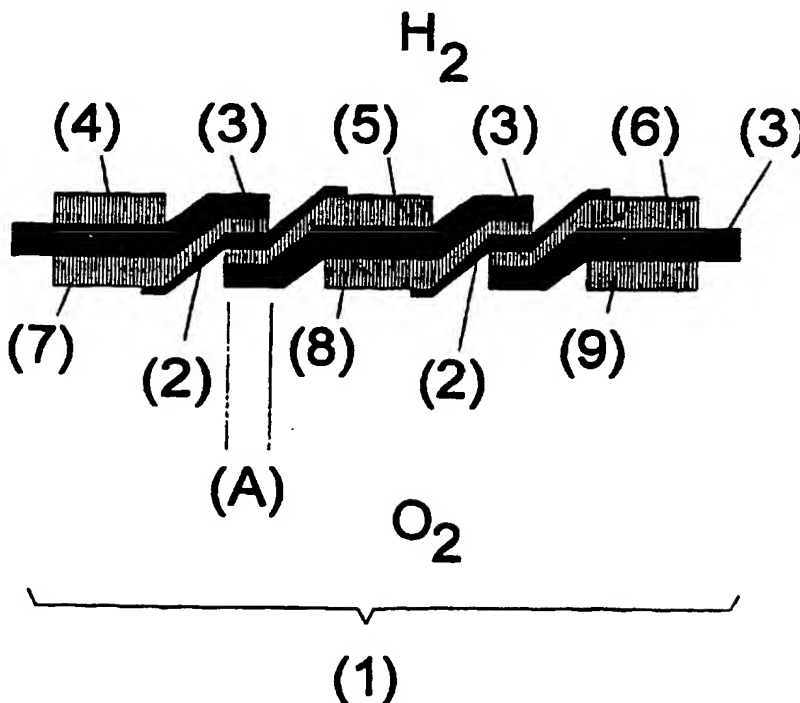
(54) Bezeichnung: ZUSAMMENFASSUNG VON EINZELZELLEN ZU EINER MEMBRANELEKTRODEN-EINHEIT UND DEREN  
VERWENDUNG

## (57) Abstract

The invention relates to an assembly of flat single cells consisting of a solid polymer electrolyte and electrode areas applied to both sides thereof into a diaphragm electrode unit in which 2 to 10,000 single cells are connected in series through the stepwise overlapping of the electrode areas (4, 5, 6) of one single cell with the opposite electrode area (7, 8, 9) of the next cell, thus forming a one-dimensional diaphragm electrode unit (1), and a shunt conductive structure of electronically conductive material is placed at least between the overlapping electrode areas.

## (57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft eine Zusammenfassung von flächigen Einzelzellen, die jeweils aus einem polymeren Festelektrolyten und darauf beidseitig aufgebrachtten Elektrodenflächen bestehen, zu einer Elektrodenmembraneinheit, wobei 2 bis 10.000 Einzelzellen unter treppenförmiger Überlappung der Elektrodenflächen (4, 5, 6) einer Einzelzelle mit der gegenüberliegenden Elektrodenfläche (7, 8, 9) der nächsten Einzelzelle in Reihe geschaltet sind und so eine eindimensionale Elektroden-Membran-Einheit (1) bilden und daß zumindest zwischen den sich überlappenden Elektrodenflächen eine aus elektronisch leitfähigem Material gefertigte Querleitstruktur angeordnet ist.



# **LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AM	Armenien	GB	Vereinigtes Königreich	MX	Mexiko
AT	Österreich	GE	Georgien	NE	Niger
AU	Australien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BB	Barbados	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BE	Belgien	HU	Ungarn	NZ	Neuseeland
BF	Burkina Faso	IE	Irland	PL	Polen
BG	Bulgarien	IT	Italien	PT	Portugal
BJ	Benin	JP	Japan	RO	Rumänien
BR	Brasilien	KE	Kenya	RU	Russische Föderation
BY	Belarus	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CA	Kanada	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KR	Republik Korea	SG	Singapur
CG	Kongo	KZ	Kasachstan	SJ	Slowenien
CH	Schweiz	LI	Liechtenstein	SK	Slowakei
CI	Côte d'Ivoire	LK	Sri Lanka	SN	Senegal
CM	Kamerun	LR	Liberia	SZ	Swasiland
CN	China	LX	Litauen	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Tschechische Republik	LV	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	Trinidad und Tobago
DK	Dänemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
EE	Estland	MG	Madagaskar	UG	Uganda
ES	Spanien	ML	Mali	US	Vereinigte Staaten von Amerika
FI	Finnland	MN	Mongolei	UZ	Usbekistan
FR	Frankreich	MR	Mauritanien	VN	Vietnam
GA	Gabon	MW	Malawi		

**Zusammenfassung von Einzelzellen zu einer Membran-  
elektroden-Einheit und deren Verwendung**

5

Die Erfindung betrifft eine Zusammenfassung von Einzelzellen zu einer Membranelektrodeneinheit, bei der die Einzelzellen durch treppenförmige übereinanderlagerung der Elektrodenflächen hintereinander geschaltet sind und dessen Verwendung in einer Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzelle.

10

Elektrochemische Zellen z.B. mit polymeren Festelektrolyten (PEM), bestehen vereinfachend aus zwei Elektroden, an denen die elektrochemischen Reaktionen ablaufen, sowie einem dazwischenliegenden Elektrolyten, der die Aufgabe des Ionentransportes zwischen den Elektroden erfüllt und der aus einem ionenleitenden Polymer besteht.

15

20

Laufen an beiden Elektroden freiwillig elektrochemische Reaktionen ab (Oxidation an der Anode, Reduktion

an der Kathode), so liefert die elektrochemische Zelle eine Spannung. Eine einzelne Zelle liefert nur eine relativ kleine Spannung im Bereich einiger Millivolt bis hin zu einigen Volt. Für viele praktische  
5 Anwendungen, wie beispielsweise für die Anwendung von Batterie-Brennstoffzellen im Traktionsbereich werden allerdings wesentlich höhere Spannungen benötigt.

Bisher werden deshalb eine Vielzahl solcher Zellen  
10 separat aufgebaut, hintereinander angeordnet und elektrisch in Reihe verschaltet, so daß sich die Spannungen der Einzelzellen addieren (biopolare Stackbauweise). Diese Art der Reihenschaltung ermöglicht zwar die Realisierung höherer Spannungen, ist  
15 jedoch mit erheblichen Nachteilen verbunden. So ist der konstruktionstechnische Aufwand einer derartigen Reihenschaltung sehr hoch. Man benötigt so z.B. für einen Wasserstoff-/Sauerstoff-Brennstoffzellenstack im allgemeinen für jede Einzelzelle eine bipolare  
20 Platte, einen Wasserstoff-Gasverteillerring, eine mit Katalysator beschichtete Ionenaustauschermembran, einen Sauerstoff-Gasverteillerring, Dichtungsringe zum Abdichten dieser Komponenten sowie die Stromver-  
25 teilerstrukturen. Diese sind insgesamt 10 Komponenten je Einzelzelle. Soll nun beispielsweise eine Stackausgangsspannung von 70 V realisiert werden, so sind bei einer Einzelzellenspannung von 0,7 V immerhin 100 Einzelzellen nötig, d.h. 1.000 Komponenten müssen  
30 zusammengefügt werden, wobei 400 Dichtungsringe fixiert werden müssen.

Weiter nachteilig ist aufgrund der Reihenschaltung, daß bei Ausfall einer einzigen Zelle im Brennstoffzellenstack der gesamte Stack zusammenbricht. Eine  
35 redundante Bauweise für obiges Beispiel, d.h. die

Parallelschaltung mehrerer 70 V Stacks würde jedoch den Konstruktionsaufwand in nicht mehr tragbare Bereiche treiben. Entscheidend für die effiziente Betriebsweise einer PEM-Brennstoffzelle ist demnach der Aufbau, der Membranelektrodeneinheit.

Ausgehend hiervon, ist es daher die Aufgabe der vorliegenden Erfindung eine Membranelektrodeneinheit anzugeben, die vorrangig für den Einsatz im PEM-Brennstoffzellen geeignet ist, wobei diese Membranelektrodeneinheit eine hohe Ausgangsspannung sowie einen einfachen und kostengünstigen Aufbau besitzen soll.

Die Aufgabe wird durch die kennzeichnenden Merkmale des Anspruches 1 gelöst. Die Unteransprüche zeigen vorteilhafte Weiterbildungen auf.

Erfindungsgemäß wird somit vorgeschlagen, eine Membranelektrodeneinheit in der Weise aufzubauen, daß eine Zusammenfassung von mehreren Einzelzellen vorgesehen ist, wobei die Zusammenfassung so vorgenommen wird, daß sich die Elektrodenflächen treppenförmig überlagern, wobei im Überlappungsbereich Querleitstrukturen eingearbeitet sind.

Die erfindungsgemäße Membran-Elektroden-Einheit besteht aus ionisch leitfähigen Membranbezirken, die beiseitig mit Elektrodenmaterial kontaktiert sind. Im Falle einer Wasserstoff/Sauer-Brennstoffzelle ist dann jeder Membranbezirk auf der einen Seite mit einer Wasserstoffelektrode und auf der gegenüberliegenden Seite mit einer Sauerstoffelektrode kontaktiert. Alle Wasserstoffelektroden befinden sich somit auf einer Membranseite, alle Sauerstoffelektrode auf d r

anderen Membranseite. Jeder Membranbezirk bildet zusammen mit den zwei kontaktierten Elektroden eine Brennstoffzellen-Einheit und liefert somit eine Ausgangsspannung. Charakteristisch für die erfindungsgemäße Membran-Elektroden-Einheit ist nun, daß jede Einzelzelle innerhalb der Membran in Reihe verschaltet ist. Dies wird erfindungsgemäß dadurch realisiert, daß unter treppenförmiger Überlappung der Elektrodenfläche eine Einzelzelle mit der gegenüberliegenden Elektrodenfläche der nächsten Einzelzelle eine Reihenverschaltung realisiert wird. Somit addieren sich alle Ausgangsspannungen jeder Einzelzelle auf. Auf diese Weise kann dann die Summe der Spannungen aller Brennstoffzellen-Einheiten, z.B. an der ersten Elektrode der Membranoberseite und der letzten Elektrode der Membranunterseite, erhalten werden. Bei der erfindungsgemäßen treppenförmigen Ausgestaltung der Membran-Elektroden-Einheit ist wichtig, daß eine sehr gute Querleitfähigkeit der einzelnen außenliegenden Elektrodenflächen erreicht wird, da der gesamte Zellstrom durch den Querschnitt dieser Beschichtung fließen muß. Es ist jedoch bekannt, daß Elektroden je nach Ausführungsform, z.B. wenn die Elektrode aus einem aufgepreßten Katalysatorpulver besteht, schlechte Querleitfähigkeit bis hin zu mehreren 100 Ohm aufweisen. Zur Vermeidung der dadurch entstehenden hohen Zellspannungsverluste verfügt die erfindungsgemäße Membran-Elektroden-Einheit über sog. Querleitstrukturen, die in den überlappenden Elektrodenflächen angeordnet sind. Somit wird der durch die schlechte Querleitfähigkeit der Elektrodenbeschichtung erzeugte Widerstand zwischen zwei benachbarten aber gegenüberliegenden Elektroden deutlich herabgesetzt. Somit steht erstmals eine Membran-Elektroden-Einheit zur Verfügung, die nicht nur eine hohe Aus-



gangsspannung und einen einfachen und kostengünstigen Aufbau besitzt, sondern die auch nahezu keine interne Zellspannungsverluste besitzt.

5 Die Einzelzelle besteht dabei, um die Ionenleitfähigkeit zu gewährleisten, aus einem ionenleitfähigen Material. Dazu werden polymere Festelektrolyten in Form von Membranen eingesetzt. Da entweder Kationen oder Anionen transportiert werden müssen, muß die  
10 Membrane entweder für Kationen oder für Anionen permeabel sein. Die Ionenleitfähigkeit ist dabei in wässriger Umgebung für kationenleitende Polymere im allgemeinen dann gegeben, wenn im Polymer fest verankerte, d.h. im allgemeinen durch chemische Bindung  
15 verankerte Carbonsäuregruppen und/oder Sulfonsäuregruppen und/oder Phosphonsäuregruppen vorhanden sind. Für anionenleitende Polymer ist die Ionenleitfähigkeit insbesondere dann gegeben, wenn das Polymer Aminogruppen, quartäre Ammoniumgruppen oder Pyridiniumgruppen enthält. Die Fähigkeit der Ionenleitfähigkeit wird bei den bisher beschriebenen Möglichkeiten  
20 dadurch erzeugt, daß in der Membran fest verankerte Ionen existieren oder bei Quellung in Wasser erzeugt werden.

25 Beispiele für kationenleitende Polymere dieses Typs sind sulfonierte Polysulfone, Polyethersulfone oder auch Polyetherketone.

30 Die Dicke der Membran kann dabei im Bereich zwischen 0,1  $\mu\text{m}$  und 5 mm, bevorzugt im Bereich von 10  $\mu\text{m}$  bis 200  $\mu\text{m}$  liegen. Die Flächen der Membran für die Einzelzelle richten sich dabei nach der geforderten Leistung des Stacks. Die Flächen können im Bereich von

100  $\mu\text{m}^2$  bis 1 000 000  $\text{mm}^2$  liegen, bevorzugt im Bereich von 100 bis 10 000  $\text{mm}^2$ .

5 Um die Funktion als Einzelzelle zu ermöglichen, sind nun die vorstehend beschriebenen Membranen beidseitig mit Elektrodenmaterial beschichtet. Da an den Elektroden die elektrochemischen Umsetzungen der Zelle erfolgen, können die Elektroden entweder selbst aus dem Material bestehen, das elektrochemisch umgesetzt  
10 wird, oder aus Material, welches die elektrochemische Umsetzung katalysiert. Das Material muß elektronisch leitfähig sein und besteht insbesondere aus Metallen, Metalloxiden, Mischoxiden, Legierungen, Kohlenstoff, elektronisch leitfähigen Polymeren oder Mischungen  
15 hieraus.

Die Materialien können Zusatzstoffe enthalten, die der Einstellung von Hydrophilie, Hydrophobie dienen. Damit können die Elektrodenschichten beispielsweise  
20 mit wasserabweisenden Eigenschaften ausgestattet werden. Weiter sind Zusatzstoffe möglich, die die Einstellung einer gewissen Porosität erlauben. Dies ist insbesondere dann von Bedeutung, wenn gasförmige Stoffe katalytisch an den Elektroden umgesetzt werden,  
25 wobei ein Dreiphasenkontakt zwischen Gas, Katalysator und ionenleitfähigem Bezirk erforderlich ist. Weiter können sog. Binder zugemischt werden, die die stabile und funktionsfähige Anbindung der Elektrode an den ionenleitenden Bezirk erleichtert.

30 Die Querleitstrukturen müssen aus Materialien bestehen, welche eine sehr gute elektronische Leitfähigkeit aufweisen. Typischerweise werden hierfür Metalle, Legierungen, leitfähige Kohlenstoffe, leitfähige  
35 Polymere oder mit leitfähigen Substanzen versetzte

Polymere verwendet. Bevorzugt eingesetzt werden dünne Strukturen mit einer Dicke von 10  $\mu\text{m}$  bis 500  $\mu\text{m}$ , da sie sich gut in den Flächenaufbau der erfindungsgemäßen Membran-Elektroden-Einheit integrieren lassen.

5 Weiterhin sollen die Querleitstrukturen während der Zellebensdauer stabil gegenüber den verwendeten Brennstoffen sein (z.B. Wasser/Sauerstoff in einer  $\text{H}_2/\text{O}_2$ -Brennstoffzelle) und bei den auftretenden Zellpotentialen elektrochemisch nicht angegriffen werden.  
10 Neben der guten Leitfähigkeit sollen die Querleitstrukturen dauerhaft in der Streifenmembran verankert werden können. Bevorzugt werden deshalb solche Strukturen eingesetzt, die in ihrer Beschaffenheit keine glatte Oberfläche aufweisen und beim Verkleben  
15 oder Verschmelzen mit den Membranpolymeren fest verankert werden können. Dies können z.B. Netze, Gewebe, poröse Strukturen oder Folien mit aufgerauhter Oberfläche sein. Eine solche aufrauhende Oberfläche kann beispielsweise mittels chemischer Verfahren oder  
20 durch Plasmaätzprozesse erreicht werden.

Die Querleitstrukturen können nun so ausgebildet sein, daß sie bis auf die außenliegenden Elektrodenflächen geführt sind. Die Querleitstrukturen können  
25 dabei die Elektrodenflächen nahezu vollständig bedecken oder nur teilweise.

Nach einer bevorzugten Ausführungsform wird weiterhin vorgeschlagen für den Fall, daß die Querleitstruktur  
30 die außenliegenden Elektrodenflächen nur teilweise bedeckt, noch zusätzlich brennstoffdurchlässige elektronisch leitfähige Verteilerstrukturen anzuordnen. Diese leitfähigen Verteilerstrukturen können entweder  
35 direkt auf der Elektrodenfläche oder über der Elektrodenfläche und der Querleitstruktur angeordnet

sein. Die Aufgabe dieser Verteilerstrukturen liegt darin, die Querleitstruktur ohne signifikante elektrische Verluste an die gesamte Elektrodenoberfläche anzubinden und gleichzeitig eine Brennstoffzufuhr an der Elektrodenoberfläche zu ermöglichen. Demgemäß müssen die Verteilerstrukturen ebenfalls aus einem elektronisch leitfähigen Material bestehen. Beispiele hierfür sind Metallnetze oder Metallsinterkörper.

Die Querleitstrukturen können die Elektrodenflächen auch vollständig bedecken. In diesem Fall muß dann jedoch die Querleitstruktur im Bereich der aktiven Elektrodenflächen zusätzlich zur elektronischen Leitfähigkeit auch brennstoffdurchlässig sein, da sonst einer Versorgung der Elektroden mit Brennstoff nicht mehr möglich wäre. Auch für diese Ausführungsform der Erfindung ist es möglich und vorteilhaft, noch Verteilerstrukturen einzusetzen, die dann entweder wieder in der Anordnung Elektrodenoberfläche/Querleitstruktur/Verteilerstruktur oder Elektrodenoberfläche/Verteilerstruktur/Querleitstruktur angeordnet sind.

Die vorstehend beschriebene Zusammenfassung von flächigen Einzelzellen zu einer Elektroden-Membran-Einheit führt zu einer eindimensionalen Anordnung.

Erfindungsgemäß ist es nun auch möglich, mehrere dieser eindimensionalen Elektroden-Membran-Einheiten zu "zweidimensionalen" Elektroden-Membran-Einheiten zusammenzufassen. Hierbei sind grundsätzlich zwei Ausführungsformen möglich. Zum einen können mindestens 2 bis höchstens 50 eindimensionale Elektroden-Membran-Einheiten zusammengefaßt werden, wobei diese parallel angeordnet und parallel verschaltet sind oder diese

parallel angeordneten Elektroden-Membran-Einheiten in Reihe verschaltet werden.

5 Durch diese Ausführungsformen sind eine nochmalige Steigerung der Ausgangsspannung bzw. eine redundante Stromversorgung möglich.

10 Weitere Merkmale, Einzelheiten und Vorzüge der Erfindung ergeben sich aus der folgenden Beschreibung der Erfindung anhand der Zeichnung. Hierbei zeigen:

**Figur 1**

15 eine erfindungsgemäße Ausführungsform mit bis auf die Elektrodenaußenflächen geführten Querleitstrukturen im Querschnitt

**Figur 2**

die Ausführungsform nach Fig. 1 in der Draufsicht

20 **Figur 3**

eine Ausführungsform im Querschnitt mit auf den Querleitstrukturen angeordneten Verteilerstrukturen

**Figur 4**

25 eine Ausführungsform im Querschnitt, bei der die Verteilerstruktur zwischen außenliegenden Elektrodenflächen und der Querleitstruktur angeordnet ist

**Figur 5**

30 eine Ausführungsform im Querschnitt, bei der die Querleitstruktur die außenliegenden Elektrodenflächen vollständig überdeckt.

35 Die Elektroden-Membran-Einheit 1 nach der Ausführungsform nach Fig. 1 besteht aus ionisch leitfähigen

Membranbezirken 3, die beidseitig mit Elektrodenmaterial kontaktiert sind. Im Falle einer Wasserstoff/Sauerstoff/Brennstoff-Zelle ist also jeder Membranbezirk 3 auf der einen Seite mit einer Wasserstoff-Elektrode 4, 5, 6 und auf der gegenüberliegenden Membranseite mit einer Sauerstoff-Elektrode 7, 8, 9 kontaktiert. Alle Wasserstoff-Elektroden 4, 5, 6 befinden sich somit auf der einen Membranseite, alle Sauerstoff-Elektroden 7, 8, 9 auf der anderen Membranseite. Jeder Membranbezirk bildet zusammen mit den zwei kontaktierten Elektroden eine Brennstoffzellen-Einheit und liefert eine Ausgangsspannung von etwa 1 Volt ohne Belastung. Erfindungswesentlich für die Elektroden-Membran-Einheit ist nun ihre interne Reihenverschaltung der einzelnen Brennstoffzellen-Einheiten innerhalb der Elektroden-Membran-Einheit 1. Hierzu wird jeweils die untere Elektrode 7, 8 einer Brennstoffzellen-Einheit mit der oberen Elektrode 5, 6 der nächsten Brennstoffzellen-Einheit durch das leitfähige Elektrodenmaterial elektronisch leitend und brennstoffundurchlässig miteinander verbunden. Auf diese Weise kann die Summe der Spannungen aller Brennstoffzellen-Einheiten an der ersten Elektrode 4 und an der letzten Elektrode 9 der Membranunterseite erhalten werden. Um nun eine gute Querleitfähigkeit der Elektrodenflächen 5, 6 und 7, 8 zu erreichen, ist eine Querleitstruktur 2 mit guter elektronischer Leitfähigkeit zwischen den überlappenden Elektrodenflächen eingearbeitet. Erfindungsgemäß ist es hierbei ausreichend, wenn die Querleitstruktur 2 lediglich die überlappenden Elektrodenflächenbereiche (mit Symbol A gekennzeichnet) überdeckt. Bevorzugt ist es jedoch, wenn die Querleitstruktur von der Unter- zur Oberseite hindurchgeführt ist. Dabei verläuft nun die Querleitstruktur von einer Elektroden-

fläche einer Zelleneinheit der Elektroden-Membran-Einheit zur gegenüberliegenden Elektrode der nächsten Zelleneinheit der Elektroden-Membran-Einheit. Auf diese Art werden die Elektrodenflächen 5, 6 bzw.

5 7, 8 mittels Querleitstrukturen 2 in ihrer Querleitfähigkeit entscheidend verbessert. Wichtig für die Funktion ist, daß eine gute elektronische Leitfähigkeit der Querleitstruktur vorhanden ist. Dies wird dadurch erreicht, daß entsprechend elektronisch leitfähige Materialien eingesetzt werden. Wesentlich bei 10 dem erfindungsgemäßen Konzept ist weiterhin, daß bei der Durchführung der Querleitstrukturen 2 durch die Elektroden-Membran-Einheit keine Brennstoffdurchlässigkeit von der einen Seite der Membran hin zur anderen Seite gegeben ist. 15

Die Herstellung einer derartigen Elektroden-Membran-Einheit erfolgt aus mit Elektrodenmaterial beschichteten polymeren Festelektrolytstücken, wobei jeweils 20 zwischen zwei Festelektrolytstücke eine Querleitstruktur gelegt wird, die von der unteren Seite des jeweils ersten Festelektrolytstückes zur Oberseite des zweiten Festelektrolytstückes verläuft. Anschließend werden diese Anordnungen, jeweils bestehend aus 25 Festelektrolytstück/Querleitstruktur/Festelektrolytstück, dauerhaft und brennstoffdicht miteinander verbunden. Das Verbinden der Festelektrolytstücke miteinander und mit den Querleitstrukturen kann beispielsweise mittels Verklebungstechniken mit geeigneten Klebstoffen erfolgen. 30

Fig. 2 zeigt nun die vorstehend beschriebenen Ausführungsform in der Draufsicht. Fig. 2 verdeutlicht noch einmal, daß in der Ausführungsform nach Fig. 1 die

Querleitstruktur 2 die außenliegend Elektrodenflächen 5, 6 nur teilweise überlappen.

5 In der Ausführungsform nach Fig. 3 liegt nun die Querleitstruktur 2 direkt auf den einzelnen Elektroden 5, 6 bzw. 7, 8. Dabei kann die Querleitstruktur 2 beispielsweise aus dichtem Material oder aus Netzen bestehen, so lange eine gute Elektrodenleitfähigkeit gegeben und ein Transport von Brennstoffen von der  
10 einen zur anderen Streifenmembranseite verhindert wird. Zusätzlich ist in der Ausführungsform nach Fig. 3 eine brennstoffdurchlässige elektronisch leitfähige Verteilerstruktur 10 auf die Elektrodenfläche mit der Querleitstruktur 2 aufgelegt mit der Aufgabe, die  
15 Querleitstruktur ohne signifikante Verluste elektrisch an die gesamte Elektrodenfläche anzubinden und gleichzeitig eine Brennstoffzufuhr an die Elektrodenoberfläche zu ermöglichen.

20 Fig. 4 zeigt nun eine andere Ausführungsform und zwar eine Variante, bei der die brennstoffdurchlässige elektronisch leitfähige Verteilerstruktur 10 auf der Elektrodenfläche 4, 5, 6 bzw. 7, 8, 9 liegt erst  
25 hierauf die Querleitstruktur 10 angeordnet ist. Diese Anordnung hat den Vorteil, daß die Elektrodenoberfläche mechanisch gleichmäßig belastet wird, während bei der Ausführungsform nach Fig. 3 das Ende der Querleitstruktur 2 direkt auf der Elektrodenfläche liegt, um beim Zusammenbau der Zelle in die Membran eingedrückt werden kann. Auch bei der Ausführungsform nach  
30 Fig. 4 kann die Querleitstruktur 2 beispielsweise aus dichtem Material oder aus Netzen bestehen, so lange eine gute Elektronenleitfähigkeit gegeben und ein Transport von Brennstoffen von der einen zur Seite  
35 verhindert wird.



Die Querleitstrukturen können die Elektrodenflächen auch vollständig bedecken. Eine derartige Ausführungsform zeigt Fig. 5. In diesem Fall muß die Querleitstruktur 11 im Bereich der aktiven Elektrodenflächen zusätzlich zur elektronischen Leitfähigkeit auch brennstoffdurchlässig sein, da sonst eine Versorgung der Elektroden 5, 6 bzw. 7, 8 mit Brennstoff nicht mehr möglich wäre. Eine zusätzliche Verwendung der, wie vorstehend beschriebenen, Verteilerstrukturen ist aber auch bei dieser Ausführungsform möglich, so daß dann hier eine Anordnung Elektrodenfläche/Querleitstruktur/Verteilerstruktur oder Elektrodenfläche/Verteilerstruktur/Querleitstruktur möglich ist.

## 5 Patentansprüche

1. Zusammenfassung von flächigen Einzelzellen, die jeweils aus einem polymeren Festelektrolyten und darauf beidseitig aufgebrachten Elektrodenflächen bestehen, zu einer Elektrodenmembraneinheit, 10  
dadurch gekennzeichnet, daß 2 bis 10.000 Einzelzellen unter treppenförmiger Überlappung der Elektrodenflächen (4,5,6) 15 einer Einzelzelle mit den gegenüberliegenden Elektrodenfläche (7,8,9) der nächsten Einzelzelle in Reihe geschaltet sind und so eine eindimensionale Elektroden-Membran-Einheit (1) bilden und daß zumindest zwischen den sich überlappenden Elektrodenflächen eine aus elektronisch 20 leitfähigem Material gefertigte Querleitstruktur (2,11) angeordnet ist.
2. Zusammenfassung von Einzelzellen nach Anspruch 1, 25  
dadurch gekennzeichnet, daß die Querleitstruktur (2,11) bis auf die außenliegenden Elektrodenflächen unter deren teilweisen Überlappungen geführt ist.
3. Zusammenfassung von Einzelzellen nach Anspruch 1 oder 2, 30  
dadurch gekennzeichnet, daß die Querleitstruktur (2,11) bis auf die außenliegenden Elektrodenfläche geführt ist, wobei die Querleitstruktur 35

(2,11) diese Elektrodenfläche nahezu vollständig überdeckt.

- 5           4.   Zusammenfassung von Einzelzellen nach mindestens  
einem der Ansprüche 1 bis 3,  
dadurch gekennzeichnet, daß auf den außenliegen-  
den Elektrodenflächen und der Querleitstruktur  
eine Verteilerstruktur (10) angeordnet ist, die  
10           zumindest teilweise brennstoffdurchlässig ausge-  
bildet ist.
- 15           5.   Zusammenfassung von Einzelzellen nach mindestens  
einem der Ansprüche 1 bis 4,  
dadurch gekennzeichnet, daß zwischen den außen-  
liegenden Elektrodenflächen und der Querleit-  
struktur (2,11) eine Verteilerstruktur (10) an-  
geordnet ist, die zumindestens teilweise brenn-  
stoffdurchlässig ausgebildet ist.
- 20           6.   Zusammenfassung von Einzelzellen nach mindestens  
einem der Ansprüche 1 bis 5,  
dadurch gekennzeichnet, daß das elektronisch  
leitfähige Material der Querleitstrukturen  
(2,11) ausgewählt ist aus Metallen, Legierungen,  
25           leitfähigen Kohlenstoffmodifikationen, leitfähigen  
Polymere oder aus Mischungen davon.
- 30           7.   Zusammenfassung von Einzelzellen nach mindestens  
einem der Ansprüche 1 bis 6,  
dadurch gekennzeichnet, daß die Querleitstruktu-  
ren (2,11) eine Dicke von 0,1 bis 5 mm aufweist.

8. Zusammenfassung von Einzelzellen nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Querleitstrukturen (2,11) eine Struktur mit nicht glatter Oberfläche, wie z.B. Netze, Gewebe, poröse Strukturen oder Strukturen mit aufgerauhter Oberfläche ist.
9. Zusammenfassung von Einzelzellen nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Verteilerstruktur (10) eine elektronisch leitfähige Struktur, wie z.B. Graphitpapier oder ein Metallnetz ist.
10. Zusammenfassung von Einzelzellen nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß mindestens 2, höchstens 50 eindimensionale Elektrodenmembraneinheiten zusammengefaßt sind, wobei diese jeweils parallel angeordnet und in Reihe verschaltet sind.
11. Zusammenfassung von Einzelzellen nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß mindestens 2 bis höchstens 50 eindimensionale Elektrodenmembraneinheiten zusammengefaßt sind, wobei diese parallel angeordnet und parallel verschaltet sind.
12. Verwendung der Zusammenfassung nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 11 in einer Polymer-elektrodenmembranzelle (PEM-Zelle).

Fig. 1

1/5

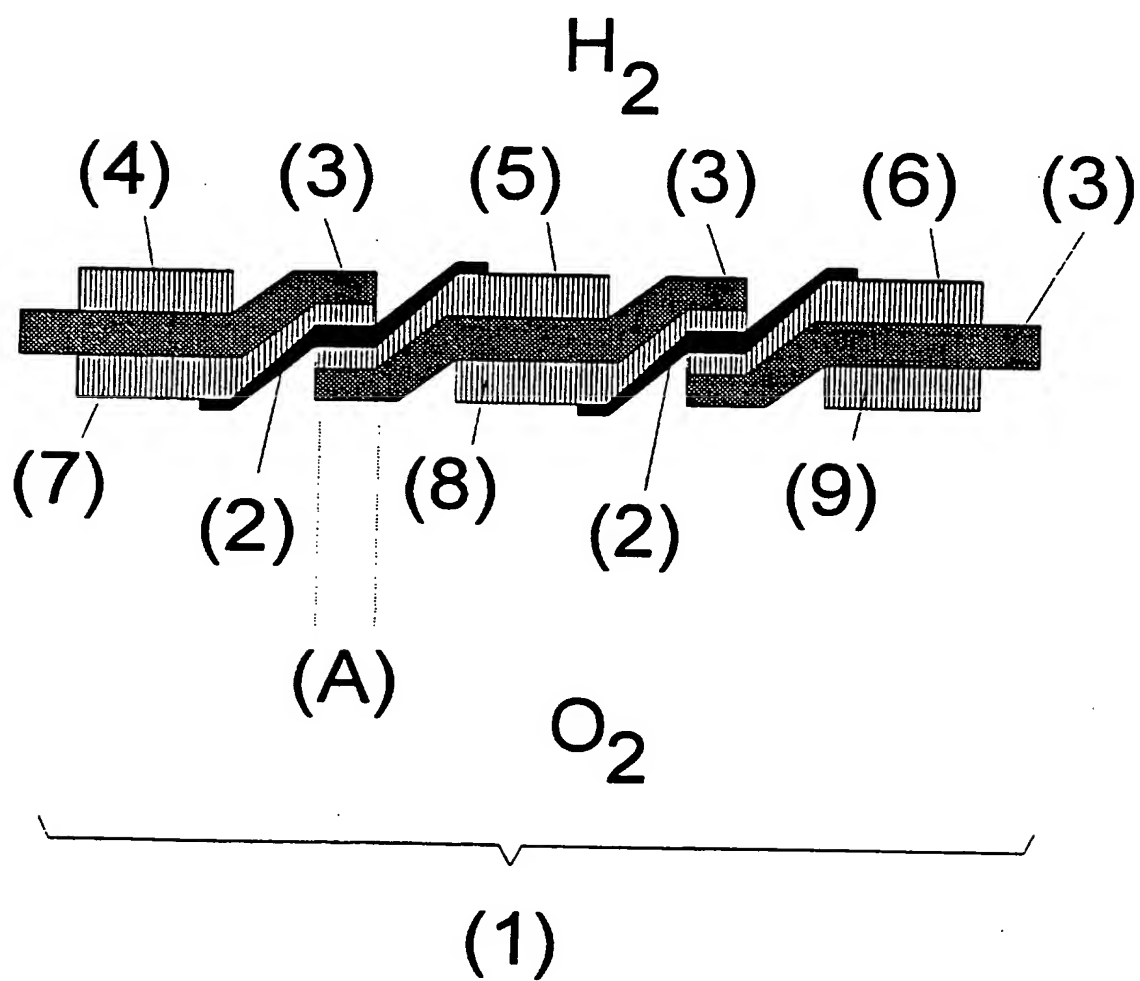


Fig. 2

2/5

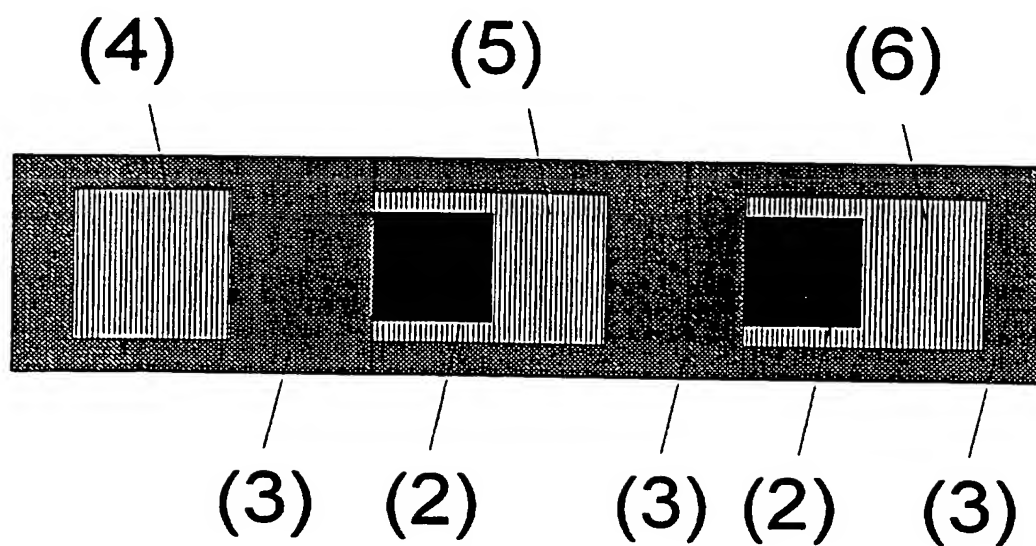


Fig. 3

3/5

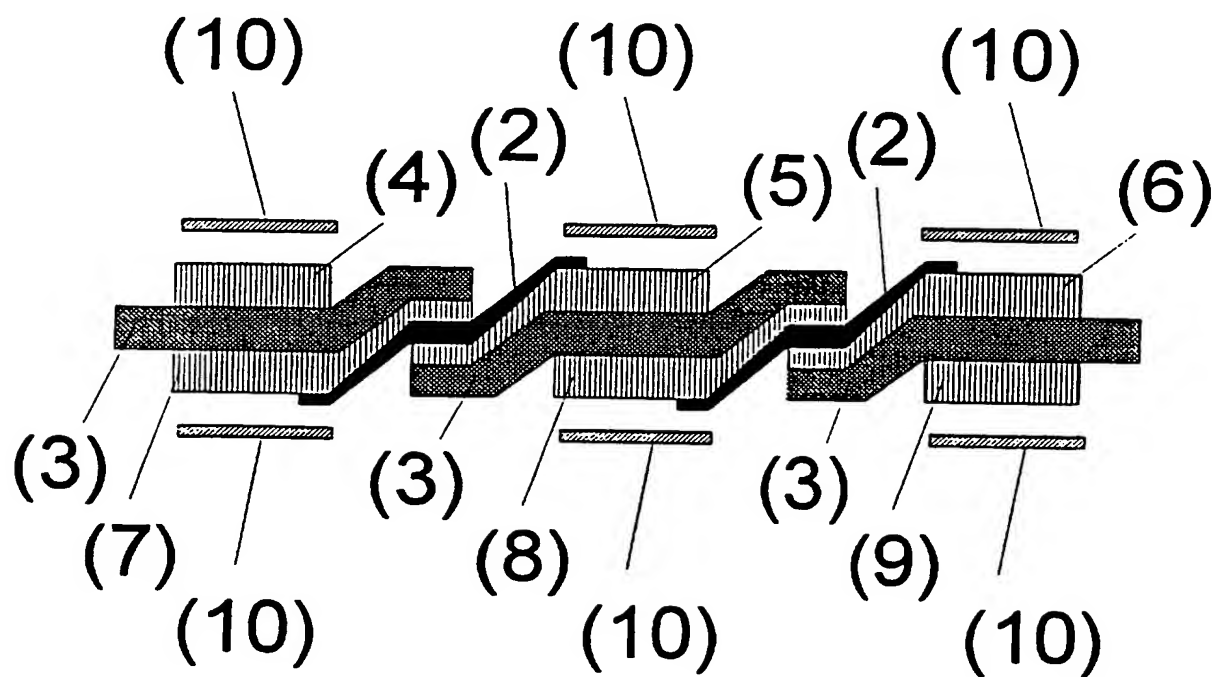


Fig. 4

4/5

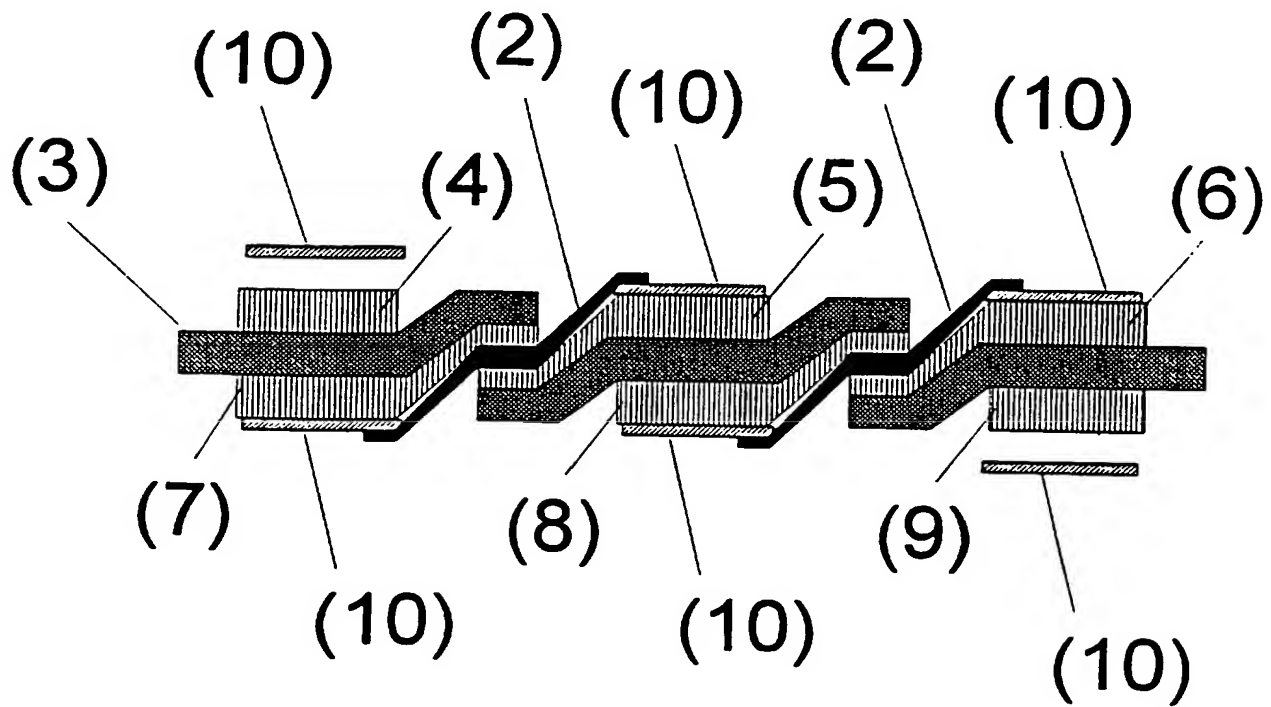
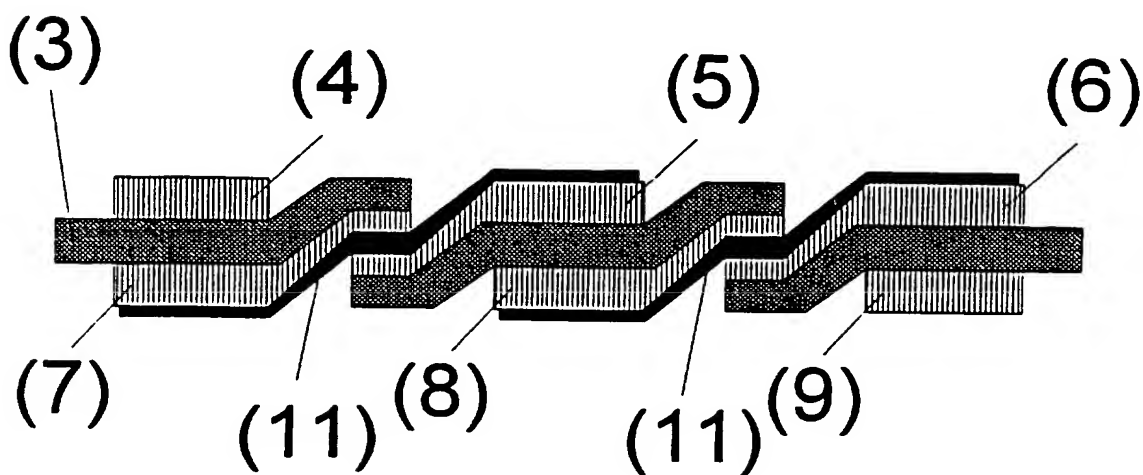




Fig. 5

5/5



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/DE 96/00111

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 H01M8/24 H01M8/10 H01M8/02 H01M6/42 H01M6/46

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
IPC 6 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,X	WO,A,95 04382 (FRAUNHOFER GES FORSCHUNG ;LEDJEFF KONSTANTIN (DE); NOLTE ROLAND (D) 9 February 1995 see page 3, line 5-27 see page 5, line 31 - page 8, line 20 see page 23, line 4-20; figures 3,4 ---	1,6,8-12
A	WO,A,94 25995 (FRAUNHOFER GES FORSCHUNG ;LEDJEFF KONSTANTIN (DE); NOLTE ROLAND (D) 10 November 1994 see page 3, line 10 - page 4, line 31 see page 7, line 20-31 see page 13, line 7-34 see figures 1-7 see claims 1-14 --- -/-	1-12

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- \*A\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

4 April 1996

Date of mailing of the international search report

23.04.96

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Engl, H

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/DE 96/00111

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	FR,A,1 452 564 (GENERAL ELECTRIC COMPANY) 8 December 1966 see the whole document ---	1-12
A	US,A,3 554 809 (CRAFT DONALD W) 12 January 1971 see column 2, line 60 - column 3, line 7 see column 3, line 34-65 see figures 1-6 ---	1-12
A	EP,A,0 198 483 (IVAC CORP) 22 October 1986 see page 1, line 3 - page 2, line 24 see page 5, line 11-34 see figure 2 -----	1-12

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 96/00111

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO-A-9504382	09-02-95	DE-A- 4329819	02-02-95
WO-A-9425995	10-11-94	DE-C- 4314745	08-12-94
		EP-A- 0698300	28-02-96
FR-A-1452564	08-12-66	CH-A- 462262	
		GB-A- 1091303	
US-A-3554809	12-01-71	DE-A- 1814702	10-07-69
		FR-A- 1595324	08-06-70
EP-A-0198483	22-10-86	US-A- 4648955	10-03-87
		CA-A- 1270295	12-06-90
		JP-A- 62002466	08-01-87
		JP-A- 7169499	04-07-95

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 96/00111

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 6 H01M8/24 H01M8/10 H01M8/02 H01M6/42 H01M6/46

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationsymbole)

IPK 6 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
P,X	WO,A,95 04382 (FRAUNHOFER GES FORSCHUNG ;LEDJEFF KONSTANTIN (DE); NOLTE ROLAND (D) 9.Februar 1995 siehe Seite 3, Zeile 5-27 siehe Seite 5, Zeile 31 - Seite 8, Zeile 20 siehe Seite 23, Zeile 4-20; Abbildungen 3,4	1,6,8-12
A	--- WO,A,94 25995 (FRAUNHOFER GES FORSCHUNG ;LEDJEFF KONSTANTIN (DE); NOLTE ROLAND (D) 10.November 1994 siehe Seite 3, Zeile 10 - Seite 4, Zeile 31 siehe Seite 7, Zeile 20-31 siehe Seite 13, Zeile 7-34 siehe Abbildungen 1-7 siehe Ansprüche 1-14 ---	1-12

-/-

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

4. April 1996

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

23. 04. 96

Name und Postanschrift der Internationale Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Engl, H

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 96/00111

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	FR,A,1 452 564 (GENERAL ELECTRIC COMPANY) 8.Dezember 1966 siehe das ganze Dokument ---	1-12
A	US,A,3 554 809 (CRAFT DONALD W) 12.Januar 1971 siehe Spalte 2, Zeile 60 - Spalte 3, Zeile 7 siehe Spalte 3, Zeile 34-65 siehe Abbildungen 1-6 ---	1-12
A	EP,A,0 198 483 (IVAC CORP) 22.Oktober 1986 siehe Seite 1, Zeile 3 - Seite 2, Zeile 24 siehe Seite 5, Zeile 11-34 siehe Abbildung 2 -----	1-12

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 96/00111

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO-A-9504382	09-02-95	DE-A- 4329819	02-02-95
WO-A-9425995	10-11-94	DE-C- 4314745	08-12-94
		EP-A- 0698300	28-02-96
FR-A-1452564	08-12-66	CH-A- 462262	
		GB-A- 1091303	
US-A-3554809	12-01-71	DE-A- 1814702	10-07-69
		FR-A- 1595324	08-06-70
EP-A-0198483	22-10-86	US-A- 4648955	10-03-87
		CA-A- 1270295	12-06-90
		JP-A- 62002466	08-01-87
		JP-A- 7169499	04-07-95

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**